



町向山 1002-14 三菱マテリアル株式会社 総合
研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP).

- (74) 代理人: 清水 千春, 外(SHIMIZU, Chiharu et al.); 〒
104-0061 東京都中央区銀座8丁目16番13号 中
銀・城山ビル4階 Tokyo (JP).

- (81) 指定国/国内): AF, AG, AI, AM, AT, AU, AZ, BA, BB,
BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,
DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,
ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT,
LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ,
OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SI, TJ,
TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA,
ZM, ZW.

- (84) 指定国/広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ,
SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM,
AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許
(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,
GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI 特
許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される
各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

固体酸化物型燃料電池およびセパレータ

技 術 分 野

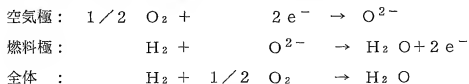
本発明は、固体酸化物型燃料電池に関し、より詳しくは、導入ガスを集電体内の全域に亘って供給することにより電極反応のアンバランスを無くし、発電効率の向上を図った平板型の固体酸化物型燃料電池におけるセパレーの構造に関するものである。

背 景 技 術

酸化物イオン伝導体からなる固体電解質層を空気極層（酸化剤極層）と燃料極層との間に挟んだ積層構造を持つ固体酸化物型燃料電池は、第三世代の発電用燃料電池として開発が進んでいる。固体酸化物型燃料電池では、空気極側に酸素（空気）が、燃料極側には燃料ガス（ H_2 、 CO 等）が供給される。空気極と燃料極は、ガスが固体電解質との界面に到達することができるように、いずれも多孔質とされている。

空気極側に供給された酸素は、空気極層内の気孔を通して固体電解質層との界面近傍に到達し、この部分で、空気極から電子を受け取って酸化物イオン（ O^{2-} ）にイオン化される。この酸化物イオンは、燃料極の方向に向かって固体電解質層内を拡散移動する。燃料極との界面近傍に到達した酸化物イオンは、この部分で、燃料ガスと反応して反応生成物（ H_2O 、 CO_2 等）を生じ、燃料極に電子を放出する。

燃料に水素を用いた場合の電極反応は次のようになる。



固体電解質層は、酸化物イオンの移動媒体であると同時に、燃料ガスと空気を

直接接触させないための隔壁としても機能するので、ガス不透過性の緻密な構造となっている。この固体電解質層は、酸化物イオン伝導性が高く、空気極側の酸化性雰囲気から燃料極側の還元性雰囲気までの条件下で化学的に安定で、熱衝撃に強い材料から構成する必要があり、かかる要件を満たす材料として、イットリ

5 アを添加した安定化ジルコニア（YSZ）が一般的に使用されている。

一方、電極である空気極（カソード）層と燃料極（アノード）層はいずれも電子伝導性の高い材料から構成する必要がある。空気極材料は、700℃前後の高温の酸化性雰囲気中で化学的に安定でなければならないため、金属は不相当であり、電子伝導性を持つペロブスカイト型酸化物材料、具体的には LaMnO_3 、もしくは LaCoO_3 、または、これらのLaの一部をSr、Ca等に置換した固

10 溶体一般在用されている。また、燃料極材料は、Ni、Coなどの金属、或いはNi-YSZ、Co-YSZなどのサーメットが一般的である。

固体酸化物型燃料電池には、1000℃前後の高温で作動させる高温作動型のものと、700℃前後の低温で作動させる低温作動型のものがある。低温作動

15 型の固体酸化物型燃料電池は、例えば電解質であるイットリアを添加した安定化ジルコニア（YSZ）の厚さを10 μm 程度まで薄膜化して、電解質の抵抗を低くすることにより、低温でも燃料電池として発電するように改良された発電セルを使用する。

高温の固体酸化物型燃料電池では、セパレータには、例えばランタクロマイ

20 ト（ LaCrO_3 ）等の電子伝導性を有するセラミックスが用いられるが、低温作動型の固体酸化物燃料電池では、ステンレス等の金属材料を使用することができる。

また、固体酸化物型燃料電池の構造には、円筒型、モノリス型、及び平板型の3種類が提案されている。それらの構造のうち、低温作動型の固体酸化物型燃料

25 電池には、金属のセパレータを使用することから、金属のセパレータに形状付与し易い平板型の構造が適している。

平板型の固体酸化物型燃料電池のスタックは、発電セル、集電体、セパレータを交互に積層した構造を持つ。一対のセパレータが発電セルを両面から挟んで、一方は空気極集電体を介して空気極と、他方は燃料極集電体を介して燃料極と接

している。燃料極集電体には、Ni 基合金等のスポンジ状の多孔質体を使用することができ、空気極集電体には、Ag 基合金等の同じくスポンジ状の多孔質体を使用することができる。スポンジ状多孔質体は、集電機能、ガス透過機能、均一ガス拡散機能、クッション機能、熱膨脹差吸収機能等を兼ね備えるので、多機能の集電体材料として適している。

セパレータは、発電セル間を電気接続すると共に、発電セルに対してガスを供給する機能を有するもので、燃料ガスをセパレータ外周面から導入してセパレータの燃料極層に対向する面から吐出させる燃料通路と、酸化剤ガスをセパレータ外周面から導入してセパレータの酸化剤極層に対向する面から吐出させる酸化剤通路とをそれぞれ有している。

<発明が解決しようとする課題>

(第 1 の課題)

ところで、低温作動の固体酸化物型燃料電池の場合、セパレータは厚さ 5 ～ 10 mm 程度の金属板（ステンレス等）を用い、その中央部に側面より導入された燃料ガスおよび酸化剤ガスを集電体に吐出するためのガス吐出孔を設けた構造のものが知られている。

図 8 はその一例を示す燃料電池スタックの要部断面図で、図 8 中、符号 3 は燃料極層、符号 6 は燃料極集電体、符号 8 はセパレータ、符号 11 は燃料通路、符号 25 はガス吐出孔であり、矢印は燃料ガスの透過状態を示している。

ところが、このような従来型のセパレータ構造は以下のような問題を有していた。

即ち、セパレータ 8 の中央部より吐出した燃料ガスは、多孔質クッション材より成る燃料極集電体 6 を通じて燃料極層 3 の全域に供給される構造であるが、実際はガスの吐出孔 25 付近での電極反応によって燃料ガスが大幅に消費され、ガス吐出孔 25 から遠ざかるに連れてガス濃度が低下するといった問題である。このため、電極全域において電極反応が均一に行われず、発電セル内で温度勾配が生じ、その際の熱応力によって発電セルが破壊されたり、非効率的な発電による発電特性の低下（発電量が発電セルの中央部で大きく周辺部で小さくなる）を招くこととなった。この問題は特に燃料極側で顕著であった。

また、厚さ 5 ～ 10 mm といった肉厚の金属板を使用することにより、単セル自体の重量が重くなり、複数の電池スタックを縦置きにして構成される固体酸化物型燃料電池の場合にあっては、下方に配置される電池スタックの発電セルがその重圧によって破損し易いといった問題がある。このため、現状ではセル構成を加重に耐え得る積層数に制限せざるを得ないといった問題が残されている。因みに、従来構造の場合、電池スタックの重量は 1 kg 程度有り、この電池スタックを多数積層した電池モジュールの総重量は 25 kg 程になる。従って、その支持構造も自ずと複雑になってくる。

(第 2 の課題)

既述のように、従来の固体酸化物型燃料電池は、電極層とセパレータの間に多孔質クッション材より成る集電体を配置し、この集電体を通してセパレータから各電極層にガスを分配供給しているが、従来構造では集電体内でのガスの滞留時間が短いため、電極反応に預からない燃料ガスが発電セル外に排出されてしまい、その分発電効率が低下するという問題があった。

また、従来構造の場合は、発電セル外周部でのガスの線速度は遅くなっており、このため、発電セルの外周部から酸化剤である空気を巻き込んで発電セル内部においても燃焼反応が起こり易く、この燃焼反応により電極反応に使用可能な燃料ガスが消費されてしまい、発電性能が低下するという問題もあった。

このような不都合な現象は、特にセパレータの中央部から燃料ガスと酸化剤ガスを燃料極集電体および酸化剤極集電体に供給する構造のセパレータを備えた燃料電池スタックにおいて顕著に発生した。

発 明 の 開 示

上記問題に鑑み、本発明の第 1 の目的は、集電体内の電極反応を均一にすることにより発電効率の向上を図ると共に、セパレータの軽量化を図って破損事故等の弊害を防止した平板型の固体酸化物型燃料電池および固体酸化物型燃料電池用セパレータを提供することを目的としている。

すなわち、請求項 1 に記載の本発明は、固体電解質層の両面に燃料極層と酸化剤極層を配置し、当該燃料極層と酸化剤極層の外側にそれぞれ燃料極集電体と酸

化剤極集電体を配置し、当該燃料極集電体と酸化剤極集電体の外側にセパレータを配置し、当該セパレータから前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給する平板型の固体酸化物型燃料電池において、前記セパレータは、導入されたガスをその中央部から吐出するための第1のガス吐出孔と周辺部に沿って環状に吐出するための複数の第2のガス吐出孔を有することを特徴としている。

本構成では、セパレータの中央部と周辺部からはガスが輪状に吐出されるため、集電体全体に十分に行き渡らせることができる。これにより、電極全域に亘って均一な電極反応が行われるようになり、中央部と周辺部とで発電量の差を無くした効率的な発電を行うことができる。

また、請求項2に記載の本発明は、請求項1に記載の平板型の固体酸化物型燃料電池において、前記セパレータは、少なくとも、前記第1のガス吐出孔と第2のガス吐出孔を設けた金属製薄板、および凸凹状に加工した金属製薄板とを含む複数の金属製薄板を積層して構成されることを特徴としている。

本構成により、セパレータ自体を軽量化できると共に、金属製薄板の凸凹がガス流路を型成するため、導入ガスはセパレータ内全域に満遍なく拡散されていき、セパレータ中央部の第1のガス吐出孔へはもとより、周辺部に環状に型成した第2のガス吐出孔へのガス供給も確実にする。

また、請求項3に記載の本発明は、請求項2に記載の平板型の固体酸化物型燃料電池において、前記第1のガス吐出孔と第2のガス吐出孔を設けた金属製薄板が少なくとも前記燃料極集電体側に配設されて成ることを特徴としている。

集電体内における電極反応の不均一性は、特に燃料ガスの供給側で顕著である。これは、燃料ガスは空気（酸化剤ガス）のように大量に供給することができず、供給量が限定されているためである。そこで、本構成では、少なくとも燃料極集電体と接するセパレータ部分にこのようなガス吐出構造を適用して燃料極層における電極反応の不均一性を改善するようにしている。

また、請求項4に記載の本発明は、各電極の外側に配した集電体に接して電極側にガス供給用のガス通路を形成する固体酸化物型燃料電池用セパレータであって、導入されたガスをその中央部から吐出するための第1のガス吐出孔と周辺部

に沿って環状に吐出するための複数の第2のガス吐出孔を有することを特徴としている。

また、請求項5に記載の本発明は、請求項4に記載の固体酸化物型燃料電池用セパレータにおいて、少なくとも、前記第1のガス吐出孔と第2のガス吐出孔を設けた金属製薄板、および凸凹状に加工した金属製薄板とを含む複数の金属製薄板を積層して構成されることを特徴としている。

また、請求項6に記載の本発明は、請求項5に記載の固体酸化物型燃料電池用セパレータにおいて、前記第1のガス吐出孔と第2のガス吐出孔を設けた金属製薄板が、少なくとも燃料極集電体側に配設されて成ることを特徴としている。

更に、本発明の別の目的は、上記従来技術の問題に鑑み、集電体内における燃料ガスや酸化剤ガスの利用率を増大することにより、発電効率の向上を図った固体酸化物型燃料電池および固体酸化物型燃料電池用セパレータを提供することである。

すなわち、請求項7に記載の発明は、固体電解質層の両面に燃料極層と酸化剤極層を配置し、当該燃料極層と酸化剤極層の外側にそれぞれ多孔質体より成る燃料極集電体と酸化剤極集電体を配置し、当該燃料極集電体と酸化剤極集電体の外側にセパレータを配置し、当該セパレータから前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給する固体酸化物型燃料電池において、前記セパレータの前記集電体と接する側の面に窪みを設け、当該集電体内におけるガスの滞留体積を大きくしたことを特徴としている。

上記構成では、スポンジ状の多孔質で成る集電体がセパレータの窪みによって膨れるため集電体の体積が増加し、ガスの供給量が一定であれば、その分ガスの滞留時間は長くなる（ガスの透過速度が遅くなる）。これにより、ガスと電極層の反応が良好に行われるようになり、発電性能が向上する。

また、請求項8に記載の発明は、固体電解質層の両面に燃料極層と酸化剤極層を配置し、当該燃料極層と酸化剤極層の外側にそれぞれ多孔質体より成る燃料極集電体と酸化剤極集電体を配置し、当該燃料極集電体と酸化剤極集電体の外側にセパレータを配置し、当該セパレータから前記燃料極集電体および酸化剤極集電

体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給する固体酸化物型燃料電池において、前記セパレータの前記集電体と接する側の面の周縁部分を膨出し、当該集電体外周部でのガスの線速度を上昇させたことを特徴としている。

- 5 外周部での排出ガスの線速度が上昇することにより、外周部からの空気の巻き込みが防止され、特に、燃料極層の周縁部においては燃料ガスの濃度を高めた状態とすることができ、発電性能が向上する。

また、請求項 9 に記載の発明は、固体電解質層の両面に燃料極層と酸化剤極層を配置し、当該燃料極層と酸化剤極層の外側にそれぞれ多孔質体より成る燃料極
10 集電体と酸化剤極集電体を配置し、当該燃料極集電体と酸化剤極集電体の外側にセパレータを配置し、当該セパレータから前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給する固体酸化物型燃料電池において、前記セパレータの前記集電体と接する側の面に窪みを設けると共に、周縁部分を膨出したことを特徴としている。

- 15 本構成では、集電体内部におけるガスの透過速度を遅くして電極反応を良好にすると共に、周縁部分でのガスの線速度を速くし、外周部からの空気の巻き込みを防止することができる。これにより、発電性能を向上できる。

また、請求項 10 に記載の本発明は、請求項 7 から請求項 9 までの何れかに記載の固体酸化物型燃料電池において、前記セパレータの表面形状が少なくとも前
20 記燃料極集電体と接する面に成されていることを特徴としている。

集電体内部でのガスの未反応現象は、主に燃料ガスの供給側で起きる。これは、燃料ガスは空気（酸化剤ガス）のように大量に供給せず、供給量が限定されているためである。そこで、本構成では、少なくとも燃料集電体と接するセパレータの面に窪みや膨出部を設けることにより、燃料集電体における前記したガスの
25 未反応現象や空気の巻き込み現象を改善するようにしている。

また、請求項 11 に記載の発明は、請求項 7 から請求項 10 までの何れかに記載の固体酸化物型燃料電池において、前記燃料ガスおよび酸化剤ガスが、前記セパレータの中央部から前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に供給される構造を有することを特徴としている。

また、請求項 1 2 に記載の発明は、各電極の外側に配した集電体に接して電極側にガス供給用のガス通路を形成する固体酸化物型燃料電池用セパレータであって、前記集電体と接する側の面に窪みを設け、当該集電体内におけるガスの滞留体積を大きくしたことを特徴としている。

- 5 また、請求項 1 3 に記載の発明は、各電極の外側に配した集電体に接して電極側にガス供給用のガス通路を形成する固体酸化物型燃料電池用セパレータであって、前記集電体と接する側の面の周縁部分を膨出し、当該集電体外周部でのガスの線速度を上昇させたことを特徴としている。

- 10 また、請求項 1 4 に記載の発明は、各電極の外側に配した集電体に接して電極側にガス供給用のガス通路を形成する固体酸化物型燃料電池用セパレータであって、前記集電体と接する側の面に窪みを設けると共に、周縁部分を膨出したことを特徴としている。

- 15 また、請求項 1 5 に記載の発明は、請求項 1 2 から請求項 1 4 までの何れかに記載のセパレータにおいて、セパレータの表面形状が、少なくとも燃料極集電体と接する面に形成されていることを特徴としている。

図面の簡単な説明

- 図 1 は、本発明に係る平板型の固体酸化物型燃料電池の要部構成を示す分解斜視図である。
- 20 図 2 a および図 2 b は、本発明に係る燃料極側のセパレータ構造を示し、図 2 a は平面図、図 2 b は断面図である。
- 図 3 は、本発明に係る燃料電池スタックの要部断面図である。
- 図 4 は、本発明の第 2 の実施形態によるセパレータの形状を示す燃料電池スタックの要部断面図である。
- 25 図 5 a ～図 5 d は、セパレータの図 1 とは別の形状を示す同要部の断面図。
- 図 6 は、固体酸化物型燃料電池の分解斜視図である。
- 図 7 は、固体酸化物型燃料電池の要部の分解斜視図である。
- 図 8 は、従来の燃料電池スタックの要部断面図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施形態を図面に基いて説明する。尚、説明を簡略化するため、以下の説明において従来と共通する部分については同一の符号を用いた。

5 (第1の実施形態)

図1、図2～図2b及び図3を参照して本発明の第1の実施形態を説明するが、先ず、図1に基づいて本実施形態に係る固体酸化物燃料電池の構成を説明する。

図1において、符号1は燃料電池スタックを示し、固体電解質層2の両面に燃料極層3と空気極層(酸化剤極層)4を配した発電セル5と、燃料極層3の外側の燃料極集電体6と、空気極層4の外側の空気極集電体(酸化剤極集電体)7と、各集電体6、7の外側のセパレータ8をそれぞれ順番に積層した構造を有する。本実施形態は、燃料極集電体の外周端にガスシールがないシールレス構造に適用して好適である。

15 ここで、前記固体電解質層2はイットリアを添加した安定化ジルコニア(YSZ)等で構成され、前記燃料極層3はNi、Co等の金属あるいはNi-YSZ、Co-YSZ等のサーメットで構成され、前記空気極層4はLaMnO₃、LaCoO₃等で構成され、前記燃料極集電体6はNi基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成され、前記空気極集電体7はAg基合金等のスポンジ状の
20 多孔質焼結金属板で構成されている。

前記セパレータ8は、従来型と同様に発電セル5間を電気接続すると共に、発電セル5に対してガスを供給する機能を有するものであるが、その構造は図8に示した従来型と相違している。

即ち、従来のセパレータが肉厚の金属単板で作製されているのに対し、本実施
25 形態のセパレータ8は、図2a及び図2bに示すように、複数のガス吐出孔を設けた金属製の上板21と、表面を凸凹状に加工した中板22と、平坦形状の下板23とを順次積層して成る3層構造を有する。これらは何れも、ステンレス等で成る薄い金属板が使用されている。

前記上板21には、中央部に第1の燃料ガス吐出孔25が形成され、そして周

辺部に複数の第2の燃料ガス吐出孔24が輪状に整列して形成されており、セパレータ8の外周端面より燃料通路11を介して導入された燃料ガスをこれらのガス吐出孔24および25より吐出し、これと対面する燃料極集電体6に供給するようになっている。

5 前記中板22は、セパレータとしての強度と厚さを確保するため、表面を凸凹状に加工した板金材が使用されており、これと上板21と下板23を図2bのように組み合わせて中空状のセパレータ8を構成する。この凸凹による中空部が燃料ガスを拡散し易くするガス流路として機能し、同時にセパレータ8の軽量化が実現できる。

10 尚、この凸凹形状は板金の塑性加工によって形成することができ、図示のような矩形状でなく波形（波板）としても良い。また、エンボス加工により凸凹模様を付けた板材を用いても良い。

前記下板23は燃料極側と空気極側の隔壁を構成する。既述した上板21と中板23の組み合わせは燃料極側のセパレータ構造であり、実際はこの下板23を
15 隔て空気極側のセパレータ部分が形成されることになるが、本図ではその部分を省略してある。

尚、図1に示す燃料スタック1の両端のセパレータ8（8A、8B）は、上記した燃料極側もしくは空気極側セパレータ構造の何れか一方のみを有する。

20 以上の構成の平板型の固体酸化物型燃料電池では、セパレータ8の中心部および周辺部から吐出する燃料ガスを燃料極集電体6を通して燃料極層3の全面に良好な分布で行き渡らせることができ、よって、電極層の全面に亘って効率的なガス反応が行われるようにできる。

即ち、図8に示すセパレータ8の中央部のみにガス吐出孔25を設けた従来型では、ガスが周辺部にまで十分に行き渡りにくい構造であることから、電極反応
25 に偏りが生じ、熱応力による発電セルの破壊や発電効率の低下といった問題を引き起こしていたが、本実施形態のセパレータ構造によれば、図3に示すように、セパレータ外周面より燃料通路11を介して導入された燃料ガスがセパレータ8の中空部（凸凹）をガス流路として全面に拡散されるようになり、中央部の第1の燃料ガス吐出孔25および周辺部の複数の第2の燃料ガス吐出孔24より燃料

ガスを吐出し、これと対面する燃料極集電体 6 を通して燃料極層 3 の全面に良好な分布で行き渡らせることができる。これにより、電極全域に亘って均一な電極反応が行われるようになり、中央部と周辺部とで発電量の差を無くした効率的な発電を行うことができる。

- 5 加えて、本実施形態のセパレータ 8 は、内部を空洞とする積層構造としたので、肉厚構造の従来型に比べてセパレータ自体の重量を大幅に軽減できる。係る構造は、多数の電池スタックを縦置きに積層した構造の燃料電池モジュールにおいては、下方部に位置する発電セルへの重圧を軽減するという面で極めて有効であり、これにより、燃料電池モジュールの支持構造を簡略化し、且つ、電池スタック積層数の制約を大幅に緩和することも可能となる。これにより、高起電力発電が実現できる。

15 以上、本実施形態では、燃料極集電体 6 に接するセパレータ部分の構造について説明したが、空気極集電体 7 に接する側のセパレータ部分も同様の構造とすることができる。また、上記以外のより単純なガス吐出構造（例えば、図 7 に示すように、中央部のみのガス吐出構造）とすることもできる。集電体内部での電極反応の不均一性は、特に燃料ガスの供給側で顕著であるため、少なくとも燃料極集電体 6 と対面する側のセパレータ部分に本実施形態の構造を適用することが重要である。

20 また、本実施形態では、セパレータ 8 を 3 枚の金属薄板による 3 層構造としたが、これに限定されるものではなく、下板 2 3 を省略した 2 層構造とすることも勿論可能である。これにより、セパレータ 8 の更なる軽量化が期待できる。

25 また、本実施形態では、発電セルの電解質にイットリアを添加した安定化ジルコニア（YSZ）を用いる固体酸化物型燃料電池を示したが、本発明は、その他の固体酸化物型燃料電池、例えばセリア系電解質、ガレート型電解質を用いる固体酸化物型燃料電池にも適用することができる。

（第 2 の実施形態）

次に本発明の第 2 実施形態について説明する。図 4 はセパレータの形状を示す燃料電池スタックの要部断面を示し、図 5 a ~ 図 5 d はセパレータの別の例を示す同要部の断面を示し、図 6 は固体酸化物型燃料電池の分解断面を示し、図 7 は

本実施例における同要部の分解斜視を示す。

先ず、図 6、図 7 に基づいて本実施形態に係る固体酸化物型燃料電池の構成を説明する。

図 6 中、符号 1 は燃料電池スタックを示し、固体電解質層 2 の両面に燃料極層 3 と空気極層（酸化剤極層）4 を配した発電セル 5 と、燃料極層 3 の外側の燃料極集電体 6 と、空気極層 4 の外側の空気極集電体（酸化剤極集電体）7 と、各集電体 6、7 の外側のセパレータ 8 を順番に積層した構造を有する。

前記固体電解質層 2 はイットリアを添加した安定化ジルコニア（YSZ）等で構成され、前記燃料極層 3 は Ni、Co 等の金属あるいは Ni-YSZ、Co-YSZ 等のサーメットで構成され、前記空気極層 4 は LaMnO₃、LaCoO₃ 等で構成され、前記燃料極集電体 6 は Ni 基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成され、前記空気極集電体 7 は Ag 基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成され、前記セパレータ 8 はステンレス等で構成されている。

ここで、集電体 6、7 を構成する多孔質金属板は、次の工程を経ることで作製したものである。工程の順番は、スラリー調製工程→成形工程→発泡工程→乾燥工程→脱脂工程→焼結工程である。

まず、スラリー調製工程において、金属粉末、有機溶剤（n-ヘキサン等）、界面活性剤（ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム等）、水溶性樹脂結合剤（ヒドロキシプロピルメチルセルロース等）、可塑剤（グリセリン等）、水、を混ぜて発泡スラリーを調製する。これを成形工程において、ドクターブレード法によりキャリヤシート上に薄板状に成形してグリーンシートを得る。次に発泡工程において、このグリーンシートを高温高湿環境下で、揮発性有機溶剤の蒸気圧及び界面活性剤の起泡性を利用してスポンジ状に発泡させた後、乾燥工程、脱脂工程、焼成工程を経て多孔質金属板を得る。

この場合、発泡工程において、グリーンシートの内部に発生した気泡は、全方向からほぼ等価な圧力を受けて略球状の形状で成長する。気泡が内部から拡散して大気との界面に近づくと、気泡は、気泡と大気間のスラリーの薄い部分へと成長していき、やがて気泡は破れて、気泡内部の気体は、できた小孔から大気中へ拡散していく。よって、表面に開口した連続気孔を有する多孔質金属板が得ら

れる。集電体 6、7 はこのようにして作製した 3 次元骨格構造を有する多孔質金属板を円形にカットしたものである。

一方、セパレータ 8 は、図 6、図 7 に示すように、発電セル 5 間を電気接続すると共に、発電セル 5 に対してガスを供給する機能を有するもので、燃料ガスをセパレータ 8 の外周面から導入してセパレータ 8 の燃料極集電体 6 に対向する面のほぼ中央部から吐出させる燃料通路 11 と、酸化剤ガスをセパレータ 8 の外周面から導入してセパレータ 8 の空気極集電体 7 に対向する面から吐出させる酸化剤通路 12 とをそれぞれ有している。ただし、両端のセパレータ 8 (8A、8B) は、いずれかの通路 11、12 のみを有する。

そして、本実施形態のセパレータ 8 は、図 8 に示す平坦形状の従来型と相違し、図 4 に示すように、セパレータ 8 の燃料極集電体 6 に接触する面は、中央部分を深くした窪み 8a を設けることにより椀状とされており、結果的に、その周縁部分 8b が盛り上がった状態となっている。既述したように、燃料極集電体 6 の材料自体がスポンジ状の発泡体より構成されるので、積層の際は、この発泡体がセパレータ 8 の窪み形状に密接した状態で配設されることになる。それ故、図 4 のセパレータ 8 を使用する限り、燃料極集電体 6 は中央部が従来型より膨らんだ状態（例えば、従来型の場合の燃料極集電体 6 の厚みを約 0.75 mm とすると本実施形態の場合では中央部の最大厚みが約 1.5 mm 程度に増大するようにする）となり、且つ、周縁部分が従来型より薄くなった状態（例えば、従来型の約 0.75 mm に対して約 0.2 mm 程度とする）となっている。

また 燃料電池スタック 1 の側方には、図 6 に示すように、各セパレータ 8 の燃料通路 11 に接続管 13 を通して燃料ガスを供給する燃料用マニホールド 15 と、各セパレータ 8 の酸化剤通路 12 に接続管 14 を通して酸化剤ガスを供給する酸化剤用マニホールド 16 とが、発電セル 5 の積層方向に延在して設けられている。

以上の構成の燃料電池では、セパレータ 8 の中心部から吐出する燃料ガスを、燃料極集電体 6 を通して燃料極層 3 の全面に良好な分布で行き渡らせ、電極層の全面に亘って良好なガス反応が行われるようにできる。

即ち、図 8 に示すように、平坦形状のセパレータ 8 を有する従来型では、燃料

極集電体 6 も平坦な形状を成し、特に、燃料極集電体 6 の中心部付近における燃料ガス（図中の矢印）の透過速度が速いため（即ち、集電体内でのガスの滞留時間が短い）、電極層の中心付近の電極反応が不十分となり、且つ、ガスが周辺部にまで十分に行き渡りにくい状態にあることから電極反応に偏りが生じ、反応に預からない燃料ガスの多くが発電セル外に無駄に排出されてしまう可能性があったが、図 4 に示すセパレータ 8 を用いることにより、燃料極集電体 6 自体の体積が増加するため、セパレータ 8 からのガスの供給量が一定であれば、その分、ガスの透過速度が遅くなり、集電体内のガスの滞留時間を長くすることができる。これにより、セパレータ 8 の中央部より吐出したガスは燃料集電体 6 の中央部から周辺部までの広い面を透過させて、燃料ガスを燃料極層 3 に均一に分配供給することができ、電極層の全面に亘って良好なガス反応が行われるようになる訳である。

また、本実施形態のセパレータ 8 では、周縁部を膨出した形状とすることにより、燃料極集電体 6 の周縁部分の厚みが従来型より薄くなった状態となっているため、特に、シールレス構造（燃料極集電体の外周端にガスシールがないタイプ）の場合は、集電体外周部での排出ガスの線速度が上昇し、これにより、外周部からの空気の巻き込みが防止され、発電セル内部の燃焼反応を阻止できるため、燃料極層 3 の周縁部においても燃料ガスの濃度を高めた状態を維持でき、その分、発電性能の向上が見込めることになる。

以上、本実施形態では、燃料極集電体 6 に接するセパレータ 8 の面形状について説明したが、空気極集電体 7 に接する側も同様の形状とすることができる。また、セパレータ 8 の表面形状は図 4 に限るものではなく、例えば、図 5 a ～ 図 5 d に示すような種々の形状が考えられる。図中、符号 8 a は前記同様中央部若しくはその近傍の窪みであり、符号 8 b は窪み 8 a の周縁にて盛り上がった周縁部分である。要するに、集電体の体積を大きくでき、且つ、周縁部分の厚みを薄くできるような形状であれば良い。

また、集電体 6、7 の多孔質構造としては、発泡体の他に、メッシュやフェルトなども使用することができる。

また、本実施形態では、発電セルの電解質にイットリアを添加した安定化ジル

コニア（YSZ）を用いる固体酸化物型燃料電池を示したが、本発明は、その他の固体酸化物型燃料電池、例えばセリア系電解質、ガレート型電解質を用いる固体酸化物型燃料電池にも適用することができる。

産業上の利用可能性

（第1実施形態の効果）

以上説明したように、請求項1、請求項4に記載の本発明によれば、セバレータの中央部と周辺部にガス吐出孔を設けたので、ガスを集電体全体に十分に行き渡らせることができる。これにより、電極全域に亘って均一な電極反応が行われ
10 ようになり、発電セルの中央部と周辺部とで発電量の差を無くした効率的な発電を行うことができる。

また、請求項2、請求項5に記載の本発明によれば、少なくとも、第1のガス吐出孔と第2のガス吐出孔を設けた金属製薄板、および凸凹状に加工した金属製薄板とを含む複数の金属製薄板を積層してセバレータを構成したので、セバレー
15 タ自体が軽量化され、縦型燃料電池モジュールにおける電池スタックの積層数を増やすことができるため、高起電力発電が実現できる。加えて、凸凹がガス流路を形成するため導入ガスが集電体全域に供給され易くなり、集電体内部での電極反応の不均一性を改善した効率的な発電が行えるようになる。

また、請求項3、請求項6に記載の本発明によれば、上記した請求項1と請求
20 項2のセバレータ構造を少なくとも燃料極集電体側のセバレータ部分に適用するようにしたので、特に燃料ガスの供給側で顕著である燃料極集電体内部での電極反応の不均一現象を効果的に改善することができ、これにより燃料利用率の高い効率的な発電を実現できる。

（第2実施形態の効果）

また、請求項7、請求項12に記載の発明によれば、セバレータの集電体と接
25 する側の面に窪みを設けたので、集電体内におけるガスの滞留体積が増加し、その分ガスの滞留時間（ガスの透過速度）が長くなる。その結果、ガスは集電体を通してゆっくりと広範囲に行き回り、電極層の全面において良好なガス反応が行われるようになる。これにより、燃料利用率や空気利用率が増大し、発電性能が

向上する。

また、請求項 8、請求項 1 3 に記載の発明によれば、セパレータの集電体と接する側の面の周縁部分を膨出したので、外周部での排出ガスの線速度が上昇し、外周部からの空気の巻き込みが防止され、発電セル内部の燃焼反応を阻止することができ、その結果、特に、燃料極層の周縁部においては燃料ガスの濃度を高めた状態とすることができ、よって、発電性能が向上する。

また、請求項 9、請求項 1 4 に記載の発明によれば、セパレータの集電体と接する側の面に窪みを設けると共に、周縁部分を膨出したので、集電体内部のガスの透過速度を遅くして電極反応を良好にし、且つ、周縁部分での排出ガスの線速度を速くし、外周部からの空気の巻き込みを防止することができるといった請求項 1 と請求項 2 に記載の効果が得られる。

また、請求項 1 0、請求項 1 5 に記載の発明によれば、上記したセパレータの表面形状が少なくとも燃料極集電体と接する面において成されるようにしたので、燃料集電体におけるガスの未反応現象や空気の巻き込み現象が確実に改善され、発電性能が向上する。

また、請求項 1 1 に記載の発明によれば、ガスがセパレータの中央部から燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して燃料極層および酸化剤極層に供給される構造としたので、ガスは集電体の中央部から周辺部までの広い範囲に亘ってゆっくり透過して行き電極層に均一に分配供給され、電極層の全面に亘って良好なガス反応が行われるようになる。

請 求 の 範 囲

1. 固体電解質層の両面に燃料極層と酸化剤極層を配置し、当該燃料極層と酸化剤極層の外側にそれぞれ燃料極集電体と酸化剤極集電体を配置し、当該燃料極集電体と酸化剤極集電体の外側にセパレータを配置し、当該セパレータから前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給する平板型の固体酸化物型燃料電池において、

前記セパレータは、導入されたガスをその中央部から吐出するための第1のガス吐出孔と周辺部に沿って環状に吐出するための複数の第2のガス吐出孔を有することを特徴とする平板型の固体酸化物型燃料電池。

2. 前記セパレータは、少なくとも、前記第1のガス吐出孔と第2のガス吐出孔を設けた金属製薄板、および凸凹状に加工した金属製薄板とを含む複数の金属製薄板を積層して構成されることを特徴とする請求項1に記載の平板型の固体酸化物型燃料電池。

3. 前記第1のガス吐出孔と第2のガス吐出孔を設けた金属製薄板が、少なくとも前記燃料極集電体側に配設されて成ることを特徴とする請求項2に記載の平板型の固体酸化物型燃料電池。

4. 各電極の外側に配した集電体に接して電極側にガス供給用のガス通路を形成する固体酸化物型燃料電池用セパレータであって、

導入されたガスをその中央部から吐出するための第1のガス吐出孔と周辺部に沿って環状に吐出するための複数の第2のガス吐出孔を有することを特徴とする固体酸化物型燃料電池用セパレータ。

5. 少なくとも、前記第1のガス吐出孔と第2のガス吐出孔を設けた金属製薄板、および凸凹状に加工した金属製薄板とを含む複数の金属製薄板を積層して構成

されることを特徴とする請求項 4 に記載の固体酸化物型燃料電池用セパレータ。

6. 前記第 1 のガス吐出孔と第 2 のガス吐出孔を設けた金属製薄板が、少なくとも燃料極集電体側に配設されて成ることを特徴とする請求項 5 に記載の固体酸化物型燃料電池用セパレータ。

7. 固体電解質層の両面に燃料極層と酸化剤極層を配置し、当該燃料極層と酸化剤極層の外側にそれぞれ多孔質体より成る燃料極集電体と酸化剤極集電体を配置し、当該燃料極集電体と酸化剤極集電体の外側にセパレータを配置し、当該セパレータから前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給する固体酸化物型燃料電池において、

前記セパレータの前記集電体と接する側の面に窪みを設け、当該集電体内におけるガスの滞留体積を大きくしたことを特徴とする固体酸化物型燃料電池。

8. 固体電解質層の両面に燃料極層と酸化剤極層を配置し、当該燃料極層と酸化剤極層の外側にそれぞれ多孔質体より成る燃料極集電体と酸化剤極集電体を配置し、当該燃料極集電体と酸化剤極集電体の外側にセパレータを配置し、当該セパレータから前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給する固体酸化物型燃料電池において、

前記セパレータの前記集電体と接する側の面の周縁部分を膨出し、当該集電体外周部でのガスの線速度を上昇させたことを特徴とする固体酸化物型燃料電池。

9. 固体電解質層の両面に燃料極層と酸化剤極層を配置し、当該燃料極層と酸化剤極層の外側にそれぞれ多孔質体より成る燃料極集電体と酸化剤極集電体を配置し、当該燃料極集電体と酸化剤極集電体の外側にセパレータを配置し、当該セパレータから前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給する固体酸化物型燃料電池において、

て、

前記セパレータの前記集電体と接する側の面に窪みを設けると共に、周縁部分を膨出したことを特徴とする固体酸化物型燃料電池。

- 5 10. 前記セパレータの表面形状が少なくとも前記燃料極集電体と接する面に成されていることを特徴とする請求項7から請求項9までの何れかに記載の固体酸化物型燃料電池。

11. 前記燃料ガスおよび酸化剤ガスが、前記セパレータの中央部から前記燃料極集電体および酸化剤極集電体を介して前記燃料極層および酸化剤極層に供給される構造を有することを特徴とする請求項7から請求項10までの何れかに記載の固体酸化物型燃料電池。

12. 各電極の外側に配した集電体に接して電極側にガス供給用のガス通路を形成する固体酸化物型燃料電池用セパレータであって、

前記集電体と接する側の面に窪みを設け、当該集電体内におけるガスの滞留体積を大きくしたことを特徴とする固体酸化物型燃料電池用セパレータ。

13. 各電極の外側に配した集電体に接して電極側にガス供給用のガス通路を形成する固体酸化物型燃料電池用セパレータであって、

前記集電体と接する側の面の周縁部分を膨出し、当該集電体外周部でのガスの線速度を上昇させたことを特徴とする固体酸化物型燃料電池用セパレータ。

14. 各電極の外側に配した集電体に接して電極側にガス供給用のガス通路を形成する固体酸化物型燃料電池用セパレータであって、

前記集電体と接する側の面に窪みを設けると共に、周縁部分を膨出したことを特徴とする固体酸化物型燃料電池用セパレータ。

15. 前記セパレータの表面形状が、少なくとも燃料極集電体と接する面に形成

されていることを特徴とする請求項 1 2 から請求項 1 4 までの何れかに記載の固体酸化物型燃料電池用セパレータ。

FIG. 1

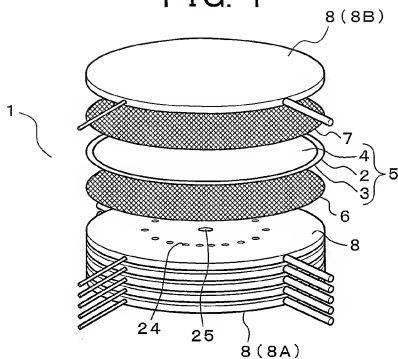


FIG. 2a

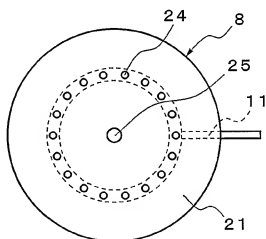


FIG. 2b

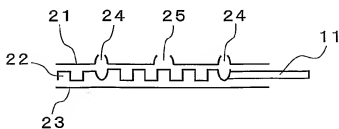


FIG. 3

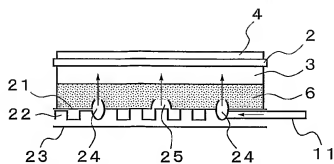


FIG. 4

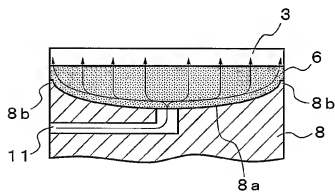


FIG. 5a

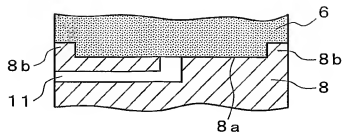


FIG. 5b

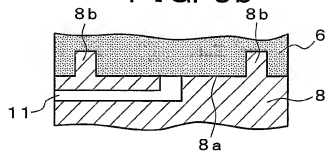


FIG. 5c

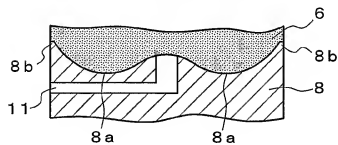


FIG. 5d

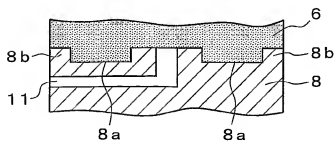


FIG. 6

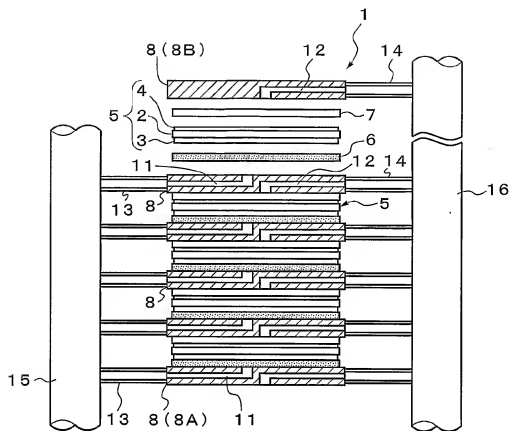


FIG. 7

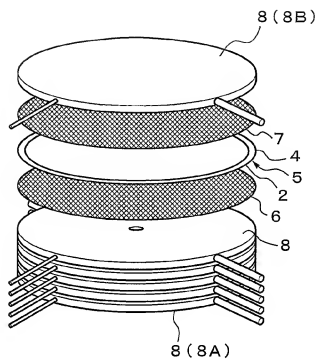
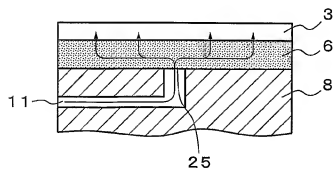


FIG. 8



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/02202

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.¹ H01M8/02, H01M8/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.¹ H01M8/02, H01M8/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-8682 A (Mitsubishi Genshi Nenryo Kabushiki Kaisha), 11 January, 2002 (11.01.02), Claims; Figs. 3, 4 (Family: none)	1-6
Y	JP 2-129857 A (Toshiba Corp.), 17 May, 1990 (17.05.90), Claims; Fig. 1 (Family: none)	1-6
Y	JP 3-225767 A (Mitsubishi Electric Corp.), 04 October, 1991 (04.10.91), Claims; Figs. 1 to 3 (Family: none)	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
03 April, 2003 (03.04.03)

Date of mailing of the international search report
15 April, 2003 (15.04.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/02202

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	CD-ROM of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 107191/1990 (Laid-open No. 63562/1992) (Sanyo Electric Co., Ltd.), 29 May, 1992 (29.05.92), Full text; Figs. 1 to 4 (Family: none)	1-6
Y	JP 5-166523 A (Tokyo Gas Co., Ltd.), 02 July, 1993 (02.07.93), Claims; Fig. 3 (Family: none)	7-15
Y	JP 7-153469 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 16 June, 1995 (16.06.95), Claims; Fig. 1 (Family: none)	7-15
Y	JP 7-45289 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 14 February, 1995 (14.02.95), Claims; Fig. 1 (Family: none)	7-15

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M8/12

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M8/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P 2002-8682 A (三菱原子燃料株式会社) 2002. 01. 11 【特許請求の範囲】、【図3】、【図4】 (ファミリーなし)	1-6
Y	J P 2-129857 A (株式会社東芝) 1990. 05. 17 特許請求 の範囲、第1図 (ファミリーなし)	1-6
Y	J P 3-225767 A (三菱電機株式会社) 1991. 10. 04 特許 請求の範囲、第1-3図 (ファミリーなし)	1-6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリ

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日以前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日以前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

03. 04. 03

国際調査報告の発送日

15.04.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

前田 寛之



4X 2930

電話番号 03-3581-1101 内線 3433

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	日本国実用新案登録出願 2-107191 号 (日本国実用新案登録出願公開 4-63562 号) の願書に添付した明細書及び図面の内容を記録した CD-ROM (三洋電機株式会社) 1992. 05. 29 全文、第 1-4 図 (ファミリーなし)	1-6
Y	JP 5-166523 A (東京瓦斯株式会社) 1993. 07. 02 【特許請求の範囲】、【図 3】 (ファミリーなし)	7-15
Y	JP 7-153469 A (三洋電機株式会社) 1995. 06. 16 【特許請求の範囲】、【図 1】 (ファミリーなし)	7-15
Y	JP 7-45289 A (三洋電機株式会社) 1995. 02. 14 【特許請求の範囲】、【図 1】 (ファミリーなし)	7-15